PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2001-354949

(43) Date of publication of application: 25.12.2001

(51)Int.CI.

Ţì

C09K 3/10 C03C 27/06 // C08L 51/06

(21)Application number: 2000-175214

(71)Applicant: YOKOHAMA RUBBER CO LTD:THE

(22)Date of filing:

12.06.2000

(72)Inventor: TAKEYAMA SHUICHI

IGAWA KATSUHIRO WATANABE JIRO

(54) SEALING AGENT COMPOSITION AND DOUBLE GLAZING USING THE SAME

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a sealing material composition which does not need a metal spacer or a secondary sealing material in preparing a double glazing, does not need the use of a primer or an adhesive resin, and is especially useful as a sealing material, and to provide a double glazing the production process of which is greatly simplified because of the use of the composition as a sealing material.

SOLUTION: This sealing material composition comprises a continuous phase formed from a non-crystalline polyolefin to which a silane compound having hydrolyzable silyl groups has been grafted and a disperse phase formed from a thermoplastic resin and/or an elastomer and has a moisture permeability of 200 g/m2.24h or lower (30 mm thickness).

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号 特開2001-354949

(P2001 - 354949A)

(43)公開日 平成13年12月25日(2001.12.25)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコート*(参考)		
C09K 3/10		C 0 9 K 3/10	G 4G061		
			Z 4H017		
C 0 3 C 27/06	101	C 0 3 C 27/06	101Z 4J002		
// C08L 51/06		C 0 8 L 51/06			
		審查請求 未請求 請求	で項の数6 OL (全 12 頁)		
(21)出顯番号	特願2000-175214(P2000-175214)	(71) 出顧人 000006714			
		横浜ゴム株式	会社		
(22)出顧日	平成12年6月12日(2000.6.12)	東京都港区新橋 5 丁目36番11号			
		(72)発明者 武山 秀一			
		神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴ			
		式会社平塚繁	造所内		
		(72)発明者 井川 勝弘			
		神奈川県平嶺	市迫分2番1号 横浜ゴム株		
		式会社平塚製	造所内		
		(74)代理人 100080159			
		弁理士 渡辺	望稔 (外1名)		
	•				

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シーリング剤組成物およびそれを用いた複層ガラス

(57)【要約】

【課題】複層ガラスにおいて、金属スペーサーや二次シ ール材を必要とせず、また、プライマーや接着樹脂の使 用を必要としない、シール材として特に有用なシーリン グ材組成物、および、該シーリング材組成物をシール材 として用いることで、製造工程が大幅に簡略化される複 層ガラスの提供。

【解決手段】連続相が、加水分解性シリル基を有するシ ラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンであ り、分散相が、熱可塑性樹脂および/またはエラストマ ーであり、透湿度が、200g/m²・24h以下(3) 0μm厚さ)であるシーリング材組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】連続相が、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンであり、分散相が熱可塑性樹脂および/またはエラストマーであり、透湿度が、 $200g/m^2 \cdot 24h以下(30μm^2)$ であるシーリング材組成物。

1

【請求項2】前記分散相が、熱可塑性樹脂連続相中に、 少なくとも一部が動的に架橋されたエラストマー組成物 からなる分散相を有する熱可塑性エラストマー組成物で ある請求項1に記載のシーリング材組成物。

【請求項3】前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと前記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの重量比が、30:70~70:30である請求項1または2に記載のシーリング材組成物。

【請求項4】前記シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが、ポリオレフィンに対するシラン化合物のグラフト率が0.1~10重量%である請求項1~3のいずれかに記載のシーリング材組成物。

【請求項5】さらに吸湿剤を含む請求項1~4のいずれかに記載のシーリング材組成物。

【請求項6】請求項1~5のいずれかに記載のシーリング材組成物をシーリング材且つスペーサーとして用いた複層ガラス。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、接着性、耐水蒸気 透過性に優れるシーリング材組成物、および、該組成物 をシーリング材且つスペーサーとして使用した複層ガラ スに関する。

[0002]

【従来の技術】現在の複層ガラスの多くは、最低2枚の ガラス板をアルミニウム製等の金属スペーサーを介して 対向させ、ガラス板の間に中空層(空気層)を形成し、 スペーサーとガラス板の間に一次シールを介在させて空 気層を外気から遮断し、さらにスペーサー、一次シール と、対向するガラス板とで囲む空隙に、ポリサルファイ ド系あるいはシリコーン系で代表される2液混合型で常 温硬化型の二次シールを打設して形成される。これま で、複層ガラスの製造方法は、まず、乾燥剤を中空を有 するスペーサーの中空部分に充填してスペーサーを組み 40 立て、ガラス板間にスペーサーを配設してガラス板間の 幅を所定間隔にセットし、その後、シーリング材を打設 するという方法がとられている。このように作業工程は 煩雑であり、さらに、常温硬化型のシーリング材を用い る複層ガラスでは、シーリング材が硬化するまで長時間 かかり、製品がすぐ出荷できなかった。特に冬季では、 養生のために加温室に入れる必要があった。このため、 複層ガラスの製造工程を簡略化し、養生時間を短縮し て、生産性を改善することが求められている。

【0003】これに対し、アルミニウム製スペーサーの 50 ない、シール材として特に有用なシーリング材組成物、

代わりに必要に応じて乾燥剤を練りこんだシーリング材 組成物をスペーサー兼シーリング材として用いる発明 が、特開平10-110072号公報等で提案されてい る。このシーリング材組成物は、ブチル系ゴム50~9 8重量%と結晶性ポリオレフィン2~50重量%とを含 み、好ましくは髙温下で混合されてなる組成物である。 この組成物を用いた複層ガラスでは、組成物が樹脂スペ ーサーと共にシーリング材としての役割も果たし、組成 物を対向配置された複層ガラス材料の端部に打設して、 10 スペーサーを有し対向するガラス板端部がシールされた 複層ガラスを製造でき、製造工程が簡略化される。しか し、該組成物はブライマーを用いなければガラスに接着 しないという問題点を持っている。さらに、該組成物を 樹脂スペーサーとして用いた複層ガラスは、常温ではガ ラス板に荷重をかけてもガラス板がずれるといったこと はないが、該組成物がゴム中に少量の樹脂を含む組成物 であるため髙温下で熱変形しやすく、特に複層ガラス製 造時に、髙温のシーリング材を打設しシーリング材を硬 化させている間にガラス板がずれてしまう、あるいは、

0 建築材等の施工後に複層ガラスが夏季に日光をうけて外 気温が上がった際、ガラス板がずれてしまうという問題 がある。 【0004】特開平10-88096号公報には、シラ

ン化合物をグラフトした無定形ボリーαーオレフィンを 含有する接着剤が提案されており、ガラス、セラミック ス、金属等への高い接着力、強力な凝集力、高い熱安定 性を有することが開示されている。しかし、複層ガラス のシーリング材且つスペーサーとして用いることによ り、金属製等のスペーサーを用いずに、復層ガラスを製 30 造する、複層ガラスのワンショットシールに用いること に関しては検討されていない。また単独では、可とう性 を有さないため、複層ガラスの熱変形等に追従できず、 シーリング剤としては使用しにくい。

【0005】また、これまで、熱可塑性樹脂連続相中に少なくとも一部が動的に架橋されたゴム組成物からなる分散相を有する、いわゆる熱可塑性エラストマー組成物を、自動車用ランプや複層ガラスのシール部に用いることが検討されてきている。しかし、これらの熱可塑性エラストマー組成物からなるシール部と、ガラスとの間に接着樹脂層を設けなければ強固な接着力が得られないという問題がある。

【0006】 このように、現状では、二次シールを用いずに、一次シールのみで接着性、形状維持性、成形性などの特性をすべて満足する複層ガラス用シーリング材は知られていない。

[0007]

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、複層 ガラスにおいて、金属スペーサーや二次シール材を必要 とせず、また、ブライマーや接着樹脂の使用を必要とし ない、シェル材よして特に有用なシーリング材料は物

および、該シーリング材組成物をシール材として用いる ことで、製造工程が大幅に簡略化される複層ガラスを提 供することである。

[0008]

【課題を解決するための手段】すなわち、本発明は、連 続相が、加水分解性シリル基を有するシラン化合物をグ ラフトした非結晶性ポリオレフィンであり、分散相が、 熱可塑性樹脂および/またはエラストマーであるシーリ ング材組成物を提供する。また、前記組成物の透湿度が 200g/m²・24h以下(30µm厚さ)であるシ 10 ーリング材組成物である。

【0009】また、前記分散相が、熱可塑性樹脂連続相 中に、少なくとも一部が動的に架橋されたエラストマー 組成物からなる分散相を有する熱可塑性エラストマー組 成物であるのが好ましい。

【0010】また、前記シラン化合物をグラフトした非 結晶性ポリオレフィンと前記熱可塑性樹脂および/また はエラストマーとの重量比が、30:70~70:30 であるのが好ましい。

結晶性ポリオレフィンが、ポリオレフィンに対するシラ ン化合物のグラフト率が0.1~10重量%であるのが 好ましい。

【0012】上記シーリング材組成物は、さらに吸湿剤 を含むのが好ましい。

【0013】さらに、本発明は、上記シーリング材組成 物のいずれかをシーリング材且つスペーサーとして用い た複層ガラスを提供する。

[0014]

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。 本発明のシーリング材組成物(以下、本発明の組成物と 記す)は、加水分解性シリル基を有するシラン化合物を グラフトした非結晶性ポリオレフィンと、熱可塑性樹脂 および/またはエラストマーとを含み、シラン化合物を グラフトした非結晶性ポリオレフィンが連続相であり、 熱可塑性樹脂および/またはエラストマーが分散相であ って、連続相中に分散相が均一に分散された形態をなす ものである。また、該組成物の透湿度は、200g/m ²・24h以下(30µm厚さ)である。

【0015】<連続相としての加水分解性シリル基を有 40 するシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィ ン>本発明に用いられる加水分解性シリル基を有するシ ラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと は、少なくとも1個のオレフィン系二重結合を有し、か つ、1~3個の直接ケイ素と結合しているアルコキシ基 を有するシラン化合物を、十分に無定形のポリーαーオ レフィンに、グラフトして得られる樹脂である。

【0016】十分に無定形のポリーα-オレフィンは、 完全に無定形であるか、またはわずかに結晶部分を有し てもよい。一般に、レントゲン回折を介して測定される 結晶化度が、25%を越えないのが好ましい。

【0017】十分に無定形のポリーα-オレフィンは、 ホモポリマーであってもコポリマーであってもよく、ホ モポリマーとしては、例えば、アタクチックポリプロピ レン (APP)、アタクチックポリプテン- (1)等が 挙げられ、または以下のモノマー組成を有するコポリマ ーまたはターポリマーであってもよい;4~10個の炭 索原子を有するα-オレフィン0~95重量%(好まし くは3~95重量%)、プロピレン5~100重量% (好ましくは5~97重量%)、および、エチレン0~ 20重量%。これらの、十分に無定形のポリーαーオレ フィンの中で、上記組成を有するコポリマーまたはター ポリマーが好ましい。

【 0 0 1 8 】上記無定形のポリーαーオレフィンにグラ フトするシラン化合物(シランカップリング剤)は、少 なくとも1個のオレフィン系二重結合を有し、かつ、直 接ケイ素と結合している3個のアルコキシ基を有するの が好ましく、具体的には、ビニルトリメトキシシラン **(VTMO)、ビニルトリエトキシシラン、ビニルート** 【0011】また、前記シラン化合物をグラフトした非 20 リス(2-メトキシーエトキシ)シラン、3-メタクリ ルオキシプロピルトリメトキシシラン(MEMO;H₂ $C=C(CH_1)COO(CH_2)_1-Si(OC$ H,),)、3-メタクリルオキシプロピルトリエトキ シシラン、ビニルジメチルメトキシシラン、ビニルメチ ルジブトキシシラン等が挙げられる。

> 【0019】十分に無定形のポリーαーオレフィンに対 し、上記不飽和シラン化合物のグラフト率が、0.1~ 10重量%が好ましく、0.5~5重量%がより好まし いた

30 【0020】上記不飽和シラン化合物は十分に無定形の ポリーαーオレフィンに、従来公知の方法によりグラフ トすることができ、例えば溶剤中で、または溶融物中で グラフトすることができる。

> 【0021】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリ オレフィンは水により架橋されるが、この架橋は被着体 の特性に応じて、空気中の水蒸気、蒸気処理もしくは温 水処理により、または被着体に含有されている水分によ り行われる。シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリ オレフィンは、特に表面にOH基を有する被着体に関し て著しく強力な接着力を示す。

> 【0022】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリ オレフィンの架橋時には、架橋速度を向上するために、 ジブチルスズジラウレートなどの有機スズ化合物といっ た架橋促進剤を添加することができる。このような架橋 促進剤の配合量は、シラン化合物をグラフトした非結晶 性ポリオレフィンに対し、0.001~20重量%が好 ましく、0.01~5重量%がより好ましい。

> 【0023】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリ オレフィンには、接着力、初期接着作用、粘度、硬度、 弾性、熱安定性、酸化安定性等を調整するために、本発

明の目的を損なわない範囲で、添加剤、例えば、接着樹 脂、可塑剤、熱安定剤、光安定剤、蛍光増白剤、帯電防 止剤、滑剤、粘着防止剤、核剤、充填剤、染料、顔料、 難燃剤等を添加することができる。

【0024】<分散相としての熱可塑性樹脂>本発明の 組成物の分散相である熱可塑性樹脂としては、水蒸気透 過率が、300×10⁻¹³ cm³ ·cm/cm² ·se c · P a 以下の熱可塑樹脂が好ましい。このような熱可 塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン系樹脂(例 えば高密度ポリエチレン(HDPE)、低密度ポリエチ 10 レン(LDPE)、超高分子量ポリエチレン(UHMW PE)、アイソタクチックポリプロピレン、シンジオタ クチックポリプロピレン、エチレンプロピレン共重合体 樹脂)、スチレン系熱可塑性エラストマー(スチレンー イソブチレンースチレン共重合体);ポリアミド系樹脂 (例えばナイロン6 (N6)、ナイロン66 (N6) 6)、ナイロン46(N46)、ナイロン11(N1 1)、ナイロン12(N12)、ナイロン610(N6 10)、ナイロン612(N612)、ナイロン6/6 6共重合体(N6/66)、ナイロン6/66/610 20 配合することができる。 共重合体(N6/66/610)、ナイロンMXD6 (MXD6)、ナイロン6T、ナイロン6/6T共重合 体、ナイロン66/PP共重合体、ナイロン66/PP S共重合体);ポリエステル系樹脂(例えばポリブチレ ンテレフタレート(PBT)、ポリエチレンテレフタレ ート (PET) などの芳香族ポリエステル):ポリエー テル系樹脂(例えばポリフェニレンオキシド(PP O)、変性ポリフェニレンオキシド(変性PPO)、ポ リフェニレンサルファイド (PPS)、ポリエーテルエ 脂(例えばポリメタクリル酸メチル(PMMA)、ポリ メタクリル酸エチル);ポリビニル系樹脂(例えばビニ ルアルコール/エチレン共重合体(EVOH)、ポリ塩 化ビニリデン(PVDC)、塩化ビニリデン/メチルア クリレート共重合体);フッ素系樹脂(例えばポリフッ 化ピニリデン(PVDF)、ポリクロルフルオロエチレ ン(PCTFE))、ポリアクリロニトリル樹脂(PA N)などを挙げることができる。また、これらを適宜組 み合わせてもよい。

【0025】これらの中でも、得られる本発明の組成物 40 の成形加工性が良好で、かつ、本発明の組成物を後述す る複層ガラスのシーリング材且つスペーサーとして用い た場合に外気温等に対する耐熱変形性が良好であり、水 蒸気透過性の吸水による低下を最小化できるなどの理由 から、熱変形温度が50℃以上のポリオレフィン系樹 脂、ポリエステル系樹脂、ポリエーテル系樹脂、フッ素 系樹脂が好適に使用できる。

【0026】<分散相としてのエラストマー>本発明の 組成物の分散相であるエラストマーとしては、水蒸気透 過率が、300×10⁻¹³ cm³ · cm/cm² · se 50

c・Pa以下のエラストマーを用いる。例えば、還化N R、エチレンプロピレンゴム(EPDM、EPM)、ポ リイソブチレン、IIR、Br-IIR、CI-II R、パラメチルスチレンとポリイソブチレンの共重合体 のハロゲン化物(X-IPMS)、エチレン・酢酸ビニ ルゴム(EVA)、塩素化ポリエチレン、クロロスルフ ォン化ポリエチレン、アクリロニトリルブタジエンゴム およびその水添物、ヒドリンゴム、スチレン・エチレン ・ブチレン・スチレン系ブロック共重合体(SEB

S)、スチレン・イソブチレン・スチレンブロック共重 合体などが挙げられる。これらの中でも、樹脂との混練 時の耐熱性、低水蒸気透過性の観点から、エチレンプロ ピレンゴム、IIR、Br-IIR、X-IPMS、ス チレン・イソブチレン・スチレンブロック共重合体が好 ましい。

【0027】上述の熱可塑性樹脂もしくはエラストマー には、分散性、耐熱性等の改善、およびその他の目的の ために、一般的に配合される補強材、充填材、軟化剤、 架橋剤、老化防止剤、加工助剤等を、必要に応じて適宜

【0028】本発明の組成物の分散相は、上記熱可塑性 樹脂とエラストマーの両方を含有してもよい。本発明の 組成物の分散相が、上記熱可塑性樹脂とエラストマーと を含む場合、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物との割 合には特に制限はないが、分散層として均一に分散する という理由から、相溶性であるか、相分離をおさえるた めに、臨界表面張力差 $\Delta \gamma$ 。が、 $|\Delta \gamma$ 。 $|\leq 3$ である ことが好ましい。

【0029】<本発明の組成物の連続相と分散相の重量 ーテルケトン(PEEK)): ポリメタクリレート系樹 30 比率 > 本発明の組成物中、前述の連続相としてのシラン 化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、分散 相としての上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマ ーとの重量比が、シラン化合物をグラフトした非結晶性 ポリオレフィン:熱可塑性樹脂および/またはエラスト マー=30:70~70:30 であるのが好ましい。こ の割合の臨界は、シラン化合物をグラフトした非結晶性 ポリオレフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエ ラストマーの体積比率と粘度比率とによる。さらに、シ ラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、 上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの重量 比は、本発明の組成物の接着性の観点から、50/50 ~70/30がより好ましい。

> 【0030】本発明の組成物は、シラン化合物をグラフ トした非結晶性ポリオレフィンが連続相であり、熱可塑 性樹脂および/またはエラストマーが分散相であって、 連続相中に分散相が均一に分散された形態をなすもので ある。このような形態をとるためには、シラン化合物を グラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上記熱可塑性 樹脂および/またはエラストマーの体積比の配合比率を 制御して、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオ

レフィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラスト マーのそれぞれの混練温度における溶融粘度との関係 が、下記関係式(1)で求められるαの値が1未満であ*

 $\alpha = (\phi_D / \phi_M) \times (\eta_M / \eta_D)$

(式中、

φ。: 分散相(ドメイン相)、すなわち、上記熱可塑性 樹脂および/またはエラストマー相の体積分率

φ_μ:連続相(マトリックス相)、すなわち、シラン化 合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン相の体積分 率

n。:シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフ ィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマー との混練時の温度および剪断速度条件における、分散相 (熱可塑性樹脂および/またはエラストマー) の溶融粘 度 (poise)

nu:シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフ ィンと、上記熱可塑性樹脂および/またはエラストマー との混練時の温度および剪断速度条件における、連続相 (シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィ ン)の溶融粘度(poise)

【0032】このαの値が1以上であると、分散構造は 逆転し、シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレ フィンが分散相となってしまうおそれがある。

【0033】本発明において、溶融粘度とは、混練加工 時の任意の温度における各成分の溶融粘度をいう。重合 体成分の溶融粘度は、温度、剪断速度(sec-1)およ び剪断応力に依存して変化するため、一般には、溶融状 態にある任意の温度、特に、混練時の温度領域におい て、細管中に溶融状態の重合体成分を流し、応力と剪断 る。

[0034]

【数1】

 $\eta = \sigma / \dot{\gamma}$

(式中、 σ :剪断応力、 γ :剪断速度) \cdots (2)

【0035】なお、溶融粘度の測定には、例えば、東洋 精機社製キャピラリーレオメーターキャピログラフ1 C を使用することができる。

【0036】<吸湿剤>本発明の組成物は、吸湿剤を含 40 有しても良い。本発明の組成物を、複層ガラスのシーリ ング材、あるいはスペーサー、特にシーリング材且つス ペーサーとして用いる場合、吸湿剤を含有するのが好ま しい。ここで、シーリング材且つスペーサーとは、複層 ガラスの対向するガラス板周端部間に、複層ガラスの空 気層の厚みを取るために配置されるスペーサーとして用 い、該スペーサーとガラス板の間にはシーリング材を打 設することなく、本発明の組成物をガラス板に圧着し て、空気層を外気から遮断するシール材としても用いる ことをいう。すなわち、本発明の組成物は、スペーサー 50

*るように調整する。

[0031]

(1)

としての役割と、シーリング材としての役割とを同時に 果たしている。なお、本発明の組成物を、複層ガラスの シーリング材として用いて他のスペーサーを用いてもよ いし、スペーサーとして用いて他のシーリング材を用い てもよい。

8

【0037】本発明の組成物に吸湿剤を含有するとと 10 で、本発明の組成物を複層ガラスのシーリング材且つス ペーサーとして用いると、複層ガラス構造内の空気層に 含まれる湿気を吸着し、空気層内を乾燥し、また、複層 ガラス外部から侵入する水分を吸収し、空気層に封入さ れる空気の露点の上昇を防止することができる。なお、 複層ガラスにおける露点とは、複層ガラスの内面に、目 視で結蹊が認められる最髙温度である。複層ガラスの吸 湿剤としては、一般に複層ガラスの金属製スペーサー等 に充填される吸湿剤を使用することができ、例えば、合 成ゼオライト、シリカゲル、アルミナ等が挙げられる。 吸湿剤の配合量は、本発明の組成物のポリマー成分(シ ラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、 熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとの総和。) 100重量部に対し、10~70重量部が好ましい。と の範囲であれば、得られる本発明の組成物が吸湿性に優 れるからである。

【0038】<その他の添加剤>本発明の組成物には、 流動性や耐熱性、物理的強度、コスト等の改善のため、 本発明の目的を損なわない範囲で、タルク、炭酸カルシ 速度を測定して、下記式にしたがって求められる値であ 30 ウム、マイカ、カーボンブラック等の充填剤;ロジンエ ステル、クマロン樹脂等の粘着付与剤、老化防止剤、熱 安定剤、酸化防止剤、加工助剤等の添加剤を加えること もできる。さらに、熱可塑性樹脂組成物には、着色等を 目的として、無機顔料、有機顔料を加えることもでき る。

> 【0039】本発明の組成物は、連続相である非結晶性 ポリオレフィンがシラン化合物をグラフトしているの で、強力な接着力を示すが、特に、ガラスとの接着性を 向上させるために、接着付与剤を添加することができ る。接着付与剤としては、ビニルシラン、メタクリルシ ラン、アミノシラン、エポキシシラン、メルカプトシラ ン等のシランカップリング剤、または、マレイン酸基、 カルボン酸基、水酸基、エポキシ基等を有するポリマー を用いることができる。例えば、マレイン酸変性ポリエ チレン、マレイン酸変性ポリプロピレン、マレイン酸変 性エチレンエチルアクリレート、エポキシ変性スチレン ブタジエン共重合体、エポキシ変性エチレン酢酸ビニル 共重合体、エチレン酢酸ビニル共重合体およびそのケン 化物等である。

【0040】また、本発明の組成物には、相溶化剤を配

合しても良い。系に相溶化剤を混合することにより、連 続相であるシラン化合物をグラフトした非結晶化ポリオ レフィンと、分散相である熱可塑性樹脂および/または エラストマーとの化学的相溶性が異なる場合に、両者を 安定化させることができ、熱可塑性樹脂および/または エラストマーを微細分散化させるという効果を得ること が出来る。相溶化剤としては、一般的に連続相成分、分 散相成分の両方または片方の構造を有する共重合体、あ るいは連続相成分または分散相成分と反応可能なエポキ ミノ基、オキサゾリン基、水酸基、シリル基等を有した 共重合体の構造を有するものが挙げられる。これらは混 合される樹脂成分とエラストマー成分の種類によって選米

*定することができる。汎用のものとして、スチレン・エ チレン・プチレン・スチレン系ブロック共重合体(SE BS) およびそのマレイン酸変性物、EPDM、EPM およびそれらのマレイン酸変性物、EPDM/スチレン またはEPDM/アクリロニトリルグラフト共重合体お よびそのマレイン酸変性物、スチレン/マレイン酸共重 合体等を挙げることができる。また相溶化剤として、特 開平11-106512に記載される変性ポリシロキサ ンを用いる事もできる。すなわち下記式(1)と

シ基、カルボキシル基、カルボニル基、ハロゲン基、ア 10 (2)、または(1)と(3)のシロキサン構造を有す るポリシロキサンが挙げられる。

【化1】

$$\begin{array}{c|c}
CH_3 \\
CH_3 \\
CH_2 - CH - CH_2 - CH_3 \\
CH_2 - CH_2 - CH_2 - CH_2 - CH_3
\end{array}$$
(2)

$$\begin{array}{c}
\left(\begin{array}{c}
CH_3 \\
SiO \\
(CH_2)_3O(R^2O)_5R^3\right)_C
\end{array}$$
(3)

(式中、R¹ は、炭素数1~6のアルキル基または炭素 数1~21のアシル基、R'は、炭素数2~4のアルキ レン基およびR³は、1価の炭化水素基を表し、aは1 ~ 200 , b\(\text{b}\)\(\text{1}\sime 200\), c\(\text{t}\)\(\text{1}\sime 200\), t\(\text{t}\)\(\text{2}\)\(\text{z}\) たは3、rは1~100およびsは1~100であ る。)

相溶化剤を配合する場合、その配合量には特に限定はな く、好ましくはポリマー成分(シラン化合物グラフトし 40 ストマーの混練に使用する混練機は、特に限定されず、 た非結晶化ポリオレフィンと、熱可塑性樹脂および/ま たはエラストマーとの総和) 100重量部に対して0. 1~10重量部の割合となる量である。

【0041】本発明の組成物の調製は、予め、シラン化 合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンと、上述の 熱可塑性樹脂および/またはエラストマーとを、2軸混 練機や、ニーダー又はニーダルーダー等の混練機に供給 して溶融混練し、連続相を形成するシラン化合物をグラ フトした非結晶性ポリオレフィン中に、熱可塑性樹脂お

とによって行う。シラン化合物をグラフトした非結晶性 ポリオレフィン、または、熱可塑性樹脂および/または エラストマーへの各種配合剤の添加は、上記の混練操作 中に行ってもよいが、混練の前に予め混合しておくこと が好ましい。

【0042】シラン化合物をグラフトした非結晶性ポリ オレフィンと、上述の熱可塑性樹脂および/またはエラ 例えば、スクリュー押出機、ニーダ、バンバリーミキサ ー、2軸混練押出機等を用いることができる。2種類以 上の混練機を使用し、順次混練してもよい。溶融混練の 条件として、温度はシラン化合物をグラフトした非結晶 性ポリオレフィンが溶融する温度以上であればよい。 【0043】次に、本発明の組成物を、混練押出機か ら、ストランド状に押し出して、冷却後、樹脂用ペレタ イザーでペレット状とするか、押し出し物をリボン状に して取り出し、その後、成形を行うこともできる。ま よび/またはエラストマーを分散相として分散させると 50 た、調整された本発明の組成物を、複層ガラスのシーリ

ング材として直接、複層ガラスのガラス板周縁端部間と すでに配置されたスペーサーとにより囲まれた空隙に打 設、充填してもよい。あるいは、調整された本発明の組 成物を押出成形、射出成形等によってスペーサーの形状 に成形しても良い。との場合、成形機から出た高温の本 発明の組成物を用いると、ガラス板とスペーサーとの間 の接着性が高くなるので好ましい。

11

【0044】<分散相としての熱可塑性エラストマー組 成物>本発明の組成物1は、図1に示すように、シラン 化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィン相からな 10 る連続相2中に分散している分散相3が、さらに、熱可 塑性樹脂連続相4中に、少なくとも一部が動的に架橋さ れたエラストマーを分散相5とする、海島構造をとる熱 可塑性エラストマー組成物であってもよい。

【0045】本発明の組成物の分散相が、上記熱可塑性 エラストマー組成物である場合、分散相中の連続相を構 成する熱可塑性樹脂と、分散相中の分散相を構成するエ ラストマーとの組み合わせは、特に限定されず、前述し た<分散相としての熱可塑性樹脂>から選ばれる1種以 上の熱可塑性樹脂と、前述した<分散相としてのエラス 20 トマー>から選ばれる1種以上のエラストマーのそれぞ れとを組み合わせて用いることができる。

【0046】本発明の組成物の分散相が、海島構造をと る熱可塑性エラストマー組成物である場合、含有される 熱可塑性樹脂とエラストマー組成物との割合には、特に 制限はないが、好ましくは重量比で熱可塑性樹脂/エラ ストマー組成物 = 25/75~90/10であり、より 好ましくは、30/70~80/20である。この割合 の臨界は熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の体積比率 と粘度比率とによる。

【0047】熱可塑性樹脂とエラストマー組成物を、溶 融状態で混練して、連続相が熱可塑性樹脂、分散相がエ ラストマー組成物である、目的の分散構造の熱可塑性エ ラストマー組成物を得るには、前述の、海島構造を与え る関係式(1)に従って、式(1)の連続相(マトリッ クス相)を熱可塑性樹脂、分散相(ドメイン相)をエラ ストマー組成物とおいて、熱可塑性樹脂とエラストマー 組成物の体積比の配合比率を制御し、熱可塑性樹脂とエ ラストマー組成物のそれぞれの混練温度における溶融粘 度との関係が、前述の関係式(1)で求められるαの値 40 が1未満であるように調整する。

【0048】なお、上述の熱可塑性エラストマー組成物 内の分散構造においては、関係式(1)の、 ϕ 。、

 $\phi_{\rm N}$ 、 $\eta_{\rm D}$ 、 $\eta_{\rm N}$ は、下記のようになる。

φ。:エラストマー組成物の体積分率

φ』:熱可塑性樹脂の体積分率

n。: 熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練時の温 度および剪断速度条件におけるエラストマー組成物の溶 融粘度 (poise)

ημ:熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練時の温 50 は、例えば、1~20phrの割合となる量が好まし

度および剪断速度条件における熱可塑性樹脂の溶融粘度 (poise)

12

【0049】この αの値が1以上であると、熱可塑性樹 脂とエラストマー組成物の分散構造は逆転し、エラスト マー組成物が連続相となってしまうおそれがある。上記 範囲内で混練することにより、混練性が安定し、エラス トマー比率を広く制御することが可能で、柔軟で高破断 伸びである熱可塑性エラストマー組成物を得ることが出 来る。

【0050】また、 η 。/ η 」は、4.0以下が好まし く、3.7以下であるのがより好ましい。この範囲であ ると、エラストマー組成物が、熱可塑性樹脂中に、0. 1μm~数10μm程度の大きさの粒子として分散され る。

【0051】本発明の組成物の分散相としての、上述の 熱可塑性エラストマー組成物には、本発明の目的を損な わない範囲で、充填剤、老化防止剤、熱安定剤、酸化防 止剤、加工助剤、相溶化剤、無機顔料、有機顔料等の添 加剤を加えることもできる。これらの添加剤としては、 前述の、本発明の組成物の分散相に配合することの出来 る添加剤として記載したものと同様の添加剤を例示する ことが出来る。また、分散相としての熱可塑性エラスト マー組成物の動的架橋に用いられる加硫剤、加硫助剤、 加硫条件等は、使用するエラストマー組成物の組成に応 じて適宜決定すればよく、特に限定されない。加硫剤と しては、一般的なゴム加硫剤(架橋剤)を用いることが できる。

【0052】ゴム加硫剤として用いられるイオウ系加硫 剤の具体例としては、粉末イオウ、沈降性イオウ、高分 散性イオウ、表面処理イオウ、不溶性イオウ、ジモルフ ォリンジサルファイド、アルキルフェノールジサルファ イド等が例示される。とのイオウ系加硫剤を用いる場合 には、その使用量は、例えば、〇.5~4phr(エラ ストマー成分100重量部当りの重量部、以下、同じ) の割合となる量が好ましい。

【0053】また、有機過酸化物系の加硫剤としては、 ベンゾイルパーオキサイド、t‐ブチルヒドロパーオキ サイド、2,4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、 2, 5-ジメチルー2, 5-ジ(t-ブチルパーオキ シ) ヘキサン、2, 5-ジメチルヘキサン-2, 5-ジ (パーオキシルベンゾエート) 等が例示される。 この有 機過酸化物系の加硫剤を用いる場合には、その使用量 は、例えば、1~15phrの割合となる量が好まし です。

【0054】さらに、フェノール樹脂系の加硫剤として は、アルキルフェノール樹脂の臭素化物や、塩化スズ、 クロロプレン等のハロゲンドナーとアルキルフェノール 樹脂とを含有する混合架橋系等が例示される。とのフェ ノール樹脂系の加硫剤を用いる場合には、その使用量

14

です。

【0055】また、その他の加硫剤として、亜鉛華(5phr程度)、酸化マグネシウム(4phr程度)、リサージ(10~20phr程度)、pーキノンジオキシム、pージベンゾイルキノンジオキシム、テトラクロローpーベンゾキノン、ポリーpージニトロソベンゼン(2~10phr程度)、メチリンジアニリン(0.2~10phr程度)等が例示される。

【0056】また、必要に応じて、加硫促進剤を添加してもよい。用いられる加硫促進剤としては、アルデヒド 10・アンモニア系、グアニジン系、チアゾール系、スルフェンアミド系、チウラム系、ジチオ酸塩系、チオウレア系等の一般的な加硫促進剤を、例えば、0.5~2phr程度用いればよい。

【0057】具体例として、アルデヒド・アンモニア系 加硫促進剤としては、ヘキサメチレンテトラミン等が; グアニジン系加硫促進剤としては、ジフェニルグアニジ ン等が;チアゾール系加硫促進剤としては、ジベンゾチ アジルジサルファイド(DM)、2-メルカプトベンゾ チアゾールおよびその Zn 塩、シクロヘキシルアミン塩 20 等が;スルフェンアミド系加硫促進剤としては、シクロ ヘキシルベンゾチアジルスルフェンアマイド(CB S)、N-オキシジエチレンベンゾチアジル-2-スル フェンアマイド、N-t-ブチル-2-ベンゾチアゾー ルスルフェンアマイド、2-(チモルポリニルジチオ) ベンゾチアゾール等が;チウラム系加硫促進剤として は、テトラメチルチウラムジサルファイド(TMT D)、テトラエチルチウラムジサルファイド、テトラメ **チルチウラムモノサルファイド(TMTM)、ジベンタ** メチレンチウラムテトラサルファイド等が;

【0058】ジチオ酸塩系加硫促進剤としては、Zn-ジメチルジチオカーバメート、Zn-ジェカーバメート、Zn-ジーn-ブチルジチオカーバメート、Zn-エチルフェニルジチオカーバメート、Tc-ジエチルジチオカーバメート、Cu-ジメチルジチオカーバメート、ピペコリンピペコリルジチオカーバメート等が;チオウレア系加硫促進剤としては、エチレンチオウレア、ジエチルチオウレア等が;それぞれ開示される。また、加硫促進剤として、一般的なエラストマー用助剤を併せて用いる 40 ことができ、例えば、亜鉛華(5 ph r 程度)、ステアリン酸やオレイン酸およびこれらのZn塩(2~4 ph r程度)等を用いることができる。

【0059】本発明の組成物の分散相としての、熱可塑性エラストマー組成物の調製は、予め、分散相の中の連続相となる熱可塑性樹脂成分と、分散相の中の分散相となる未加硫のエラストマー組成物とを、2軸混練機等の混練機に供給して溶融混練し、熱可塑性樹脂成分中にエラストマー組成物を分散させ、次に、混練下に加硫剤を添加して、エラストマー組成物を動的に架橋させること

によって行う。加硫剤等の各種添加剤の配合は、上記の 混練操作中に行ってもよいが、混練の前に予め混合して おくことが好ましい。このとき、加硫剤、加硫助剤も予 めエラストマー組成物中に混合しておき、熱可塑性樹脂 とエラストマー組成物を混練中に、エラストマー組成物 の架橋を同時に行うこともできる。

【0060】分散相としての熱可塑性エラストマー組成物を調整するために、熱可塑性樹脂とエラストマー組成物の混練に使用する混練機は、特に限定されず、前述した本発明の組成物の混練に使用できる混練機と同様のものを例示することが出来る。特に、熱可塑性エラストマー組成物の動的架橋には、2軸混練押出機を用いるのが好ましい。また、2種類以上の混練機を使用し、順次混練してもよい。

【0061】溶融混練の条件として、温度は熱可塑性樹脂が溶融する温度以上であればよい。また、混練時の剪断速度は500~8000sec⁻¹であるのが好ましい。混練の合計時間は500秒~5000秒、また、添加後の加硫時間は15秒~5分であるのが好ましい。次に、調製された熱可塑性エラストマー組成物は、混練押出機から、ストランド状に押し出して、水等で冷却後、樹脂用ペレタイザーでペレット状とするか、リボン状に押し出して、取り出す。このようにして得られる上述の熱可塑性エラストマー組成物を、前述した分散相としての熱可塑性樹脂および/またはエラストマーの代わりに用いて、本発明の組成物を調整することが出来る。

【0062】上述の、本発明の組成物の分散相としての 熱可塑性エラストマー組成物には、市販品を利用するこ とが出来、例えば、FG-03、FG-07(ともに、 30 横浜ゴム(株)製)が例示される。

【0063】上述の構成をとる本発明のシーリング材組成物の透湿度は、30μm厚さで、200g/m²・24h以下である。また、ガラスとの接着性に優れ、耐水蒸気透過性にも優れる。また、分散相として含有する特定の熱可塑性樹脂とエラストマーとが、上述のようにエラストマーが熱可塑性樹脂中に微細に分散した状態で存在する本発明の組成物は、耐熱変形性に優れる。シーリング材組成物の連続相として含有されるシラン化合物をグラフトした非結晶性ポリオレフィンが、非結晶性ポリオレフィンに対する不飽和シラン化合物のグラフト率が0.1~10重量%である本発明の組成物は、特にガラス等への接着性に特に優れる。吸湿剤を含有する本発明の組成物は、さらに吸湿性に優れる。

【0064】次に、本発明のシーリング材組成物を、シーリング材且つスペーサーとして使用した本発明の複層ガラスについて説明する。図2は、本発明の複層ガラスのガラス板に垂直な方向での概略断面図である。図2に示す複層ガラス10は、対向する2枚のガラス板6が、間に所定の体積を有する空気層8を形成するよう、2枚のガラス板6間の間隔を決めるスペーサー7を、2枚の

ガラス板6間に有する。このスペーサー7はアルミ等の 金属を用いて別にシーリング材として本発明の組成物を 設けても良いが、好ましくは、上述の本発明の組成物よ りなる。本発明の組成物よりなるスペーサーの硬度は、 JIS A硬度で、30~80であるのが好ましい。こ の範囲であれば、空気層8の温度が上昇してガラス板と スペーサーの接着面に応力がかかる場合でも、接着力が 強固な場合にガラスが破損したり、接着力が不充分な場

合に、ガラス板とスペーサーとが剥離することを回避で

きる。また、との範囲であれば、ガラス板の自重により

複層ガラスが変形することもない。

15

.

【0065】ガラス板6の間隔は、通常約6mm、ある いは約12mmである。図2では、ガラス板6は2枚で あるが、2枚に限らず、2枚以上であっても良く、必要 に応じて決めることができる。 図2 に示す本発明の複層 ガラスの例では、スペーサー7が同時にシーリング材と して2枚のガラス板6を外気からシールして保持してい る。ととで、スペーサー7は、一次シール材、二次シー ル材等を用いずとも、外部からの水分の浸入を防ぐと共 に、2枚のガラス板6を所定の間隔に保持するスペーサ 20 ーとシーリング材としての役割を果たしている。

【0066】本発明の複層ガラスのガラス板6として は、建材、車両等に用いられるガラス板を使用すること ができ、例えば、通常窓等に使用されるガラス、強化ガ ラス、金属網入りガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガ ラス、有機ガラス等を用いることができる。また、その 厚みは、適宜決められる。

【0067】本発明の複層ガラスは、基本的には、機械 と固定された2枚の平行なガラス板6の間に、押出機に 連結したノズル等で本発明の組成物を押出しながら接着 30 なお、ことで測定された透湿度と水蒸気透過率との関係 を行うことにより作製していく。場合によっては、一方 のガラス板面に本発明の組成物を押し出しておき、冷却 しないうちにもう一方のガラス板を圧着して作製するこ ともできる。なお、スペーサーを形成する本発明の組成 物は、スペーサーとして成形してガラス板に配設される 場合でも、押出機から直接ガラス板間に吐出される場合 でも、混練後の髙温の状態であるものを用いるのが好ま しい。スペーサーとガラス板との間により強固な接着性 が得られるからである。

【0068】このような構成をとる本発明の複層ガラス 40 は、従来の金属製スペーサーとシーリング材とを用いて 製造される複層ガラスと比べて、製造工程が大幅に削減 されるため、製造が非常に簡便である。また、本発明の 組成物を、シーリング材且つスペーサーとして使用する ので、従来の2液型のシーリング材のように硬化までに 長時間を要することがなく生産性が高い。本発明の組成 物は、上述したように耐水蒸気透過性に優れるので、本 発明の複層ガラスは、露点が低い。さらに、本発明の組 成物は耐熱変形性に優れるので、ガラス板が外気温等に より髙温になっても、ガラス板がずれて複層ガラスが変 50

形することがない。また、吸湿材を配合した本発明の組 成物を使用する複層ガラスでは、空気層が乾燥したまま 保持される。

[0069]

【実施例】以下に実施例を挙げ、本発明のシーリング材 組成物についてさらに詳細に説明する。

【0070】(実施例1~9、比較例1~5)第1表に 示す樹脂、配合剤を、第1表に示す配合比率(単位は重 量部)で溶融混練した。厚さ1mmのシートとして、2 〇mm巾のリボン状に加工した。次に、一辺が300m mの角ガラス2枚を6mmの間隔をもたせて平行に固定 し、その間の周縁部に上記材料を一軸押出機に供給して ノズルで押出し成形しながら配設し、複層ガラスを作成 した。また、プレス成形にて30μmのフィルム状に成 形し、透湿度の測定に供するサンプルとした。

【0071】(1)透湿度

図2に示されるようなステンレス製のカップ20に、カ ップ容量の半分の水22を入れる。カップ20の上部開 口を、実施例1~9、比較例1~5で得られた試料シー トを切断して得られた試料シート24(30μm厚)で 覆い、その上部に燒結金属板26をのせ、固定部材28 を介して、ボルト30とナット32で締める。このカッ プを25℃の雰囲気下に放置し、1ヶ月後に全体の重量 を測定し、その減少量を24時間当たりに換算して算出 し、下記式で透湿度を算出した。

透湿度 [(g/m² · 24h r)] = M/(T·A) 式中、A=透過面積[m²]

T=試験時間[day]

M = 減少重量 [g]

は、

水蒸気透過率 [cm'·cm/cm'·sec·at m]=1.767 ×10⁹×透湿度[g/m²·24h r]×厚 さ[mm]

である。

【0072】(2)ガラス板の非錫面への接着試験 ガラス板製造時に、髙温のガラス板を冷却させるために 溶融錫に接触させた面ではない面(ガラス板の非錫面と いう)を用いて、ガラスに対する接着試験を行った。

- 実施例、比較例で得られた樹脂組成物を、プレス成 形に厚さ4mmのフィルム状に成形し、ガラス板の非錫 面に塗布して、150℃で30分放置した。なお、非錫 面は、錫に接触した面より、接着困難なので、接着試験 の被着体として、非錫面を選択した。表中、濡れ性あり とは、樹脂組成物をガラス面に均一に塗布できることを 表す。濡れ性なしとは、樹脂組成物をガラス面に均一に 塗布できないことを表す。濡れ性がない場合、樹脂組成 物を持ってガラス板を持ち上げると、樹脂組成物からガ ラスが剥がれて落ちてしまった。
- 【0073】② 実施例、比較例で得られた樹脂組成物

18

17

ラス板の非錫面に塗布して、22℃、相対湿度55%で

を、プレス成形に厚さ4mmのフィルム状に成形し、ガ *結果を第1表に示す。

[0074]

11日放置した。ついで、樹脂組成物を手で剥離した。* 【表1】

第 1 表 (その1)

	実施例1	実施例2	実施列3	実施例4	実施例5	実施到6	比较列1	比较列2	比較例 3
シラグラト した非結晶性がルフィン 熱可塑性エラストマー組成物 ① 熱可塑性エラストマー組成物 ②	3 0	5 0	3 0	5 0	3 O 7 O	5 O	100	-	100
熱可塑性機論	70	5 0	70	2 5				100	
機脂改質剤 ① 機脂改質剤 ②			2 0	2 5					
相割也到 水蒸気透過性 (g/m² - 24hr)	6 5	5 5	150	1 Q 8 Q	6 0	40	5	3 0	8 0
<ガラス板の非銀面への接着試験> 非錫面に各シート4mmをのせて 150℃で30分放量	滞れ性あり	濡れ性	温れ性あり	濡れ性 あり	濡れ性 あり	濡れ性・あり	濡れ性 なし	濡れ性 なし	添れ性あり
20℃×55%に11日放置後の手卵器	接着	接着	接着	接着	よく接着	よく接着	接着世ず	接着せず	接着*1

^{*1} 流動するためスペーサとして機能せず。

【表2】

第 1 表 (その2)

	実施例7	実施例8	実施例9	比較例4	比較例 5
シラングラフト した。非結晶性利オレフィン	3 0	5 0	7 0	2 0	9 0
熱可塑性エラストマー組成物 ① 熱可塑性エラストマー組成物 ② 熱可塑性樹脂	70	50	3 0	8 0	1 0
樹脂改質剤 ① 樹脂改質剤 ② 相溶化剤					
水蒸気透過性 (g/m²·24hr)	1 6	15	2 5	1 5	5 0
くガラス板の非錫面への接着試験>					
非錫面に各シート4mmをのせて	濡れ性	濡れ性	濡れ性	濡れ性	濡れ性
150℃で30分放置	あり	あり	あり	なし	あり
20℃×55%に11日放置後の手剝離	よく接着	よく接着	よく接着	接着世ず**	接着する**

- *2 連続的熱可塑性翻覧。
- * 3 吐出時二形状保持不可。

【0075】22℃、相対湿度55%で11日放置後に、実施例1~9で得られた樹脂組成物は、ガラス板から手剥離できず、ガラス板によく接着していた。比較例1~2で得られた樹脂組成物は、ガラス板から手剥離でき、ガラス板に接着していなかった。比較例3で得られた樹脂組成物は、ガラス板に接着したが、流動したため、複層ガラスのスペーサーとして機能しなかった。比較例4で得られた樹脂組成物は、熱可塑性樹脂が連続相50

であり、シラン化合物グラフトした非結晶性ポリオレフィンが分散相であったため、ガラス板に接着しなかった。比較例5で得られた樹脂組成物は、複層ガラスを作成時、ガラス板に樹脂組成物をノズルから吐出して押出し成形しながら配設したが、成形した形状を保持できず、流れてしまうために、複層ガラスのスペーサーとして機能しなかった。

【0076】<表中の各成分>シラン化合物グラフトし

20

た非結晶性ポリオレフィン: VESTPLAST 20 6、ヒュールス社製(シラン化合物グラフト率=3重量 %)

19

熱可塑性エラストマー組成物**①**: FG-03 (連続相が HDPE、分散相が部分臭素化ブチルゴムを架橋したも の、相溶化剤として変性ポリシロキサンを含む。透湿度 = 5 [g/m²・24h] (30µm厚さ))、横浜ゴム (株)製

熱可塑性エラストマー組成物②: FG-07 (連続相が HDPE、分散相が部分臭素化ブチルゴムを架橋したも 10 の、相溶化剤は配合していない。透湿度=1.0[g/ m²・24h] (30μm厚さ))、横浜ゴム(株)製 熱可塑性樹脂: SBS (スチレン・イゾブチレン・スチ レンブロック共重合体)、カネカ社製(透湿度=30 [g/m²·24h] (30μm厚さ))

樹脂改質剤O:OPANOL(ポリイソブチレン)、B ASF社製

樹脂改質剤②:OUE-1000(水酸基を分子末端に 有する疎水性炭化水素、(ペスポール、東亜合成社製) とTMXDIとをインデックス2で反応させて得られる 20 7 スペーサー ウレタンプレポリマー)、横浜ゴム社製 相溶化剤:変性ポリシロキサン(シリコーン樹脂の主鎖 のケイ素原子に、ポリイソブチレン側鎖、メトキシ基 (あるいはエトキシ基)が結合したシリコーン樹脂)。 特開平11-106512号公報に記載されている。横 浜ゴム社製

[0077]

【発明の効果】本発明のシーリング材組成物は、ガラス 等に対する接着性、耐水蒸気透過性に優れる。本発明の シーリング材組成物をシーリング材且つスペーサーとし*30

* て使用する本発明の複層ガラスは、製造工程が、従来の 複層ガラスに比べ、大幅に削減されているので非常に簡 便に製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明のシーリング材組成物の分散相が熱可 塑性エラストマー組成物である場合の、本発明の組成物 の構造を表した模式図である。

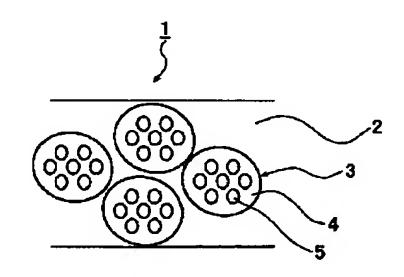
本発明の複層ガラスの1実施例の概略断面図 【図2】 である。

【図3】 透湿度を測定するためのカップの断面図であ る。

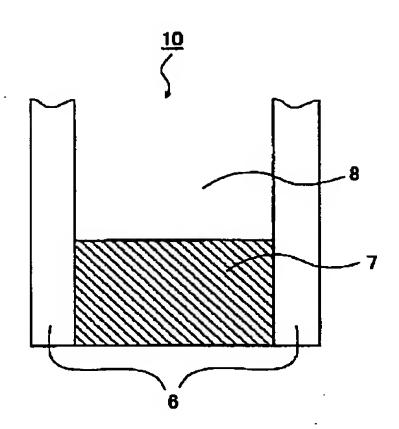
【符号の説明】

- 1 本発明のシーリング材組成物
- 2 連続相(シラン化合物がグラフトした非結晶性ポリ オレフィン)
- 3 分散相(熱可塑性エラストマー組成物)
- 4 分散相中の連続相(熱可塑性樹脂)
- 5 分散相中の分散相(エラストマー組成物)
- 6 ガラス板
- 8 空気層
- 10 復層ガラス
- 20 カップ
- 22 水
- 24 試料シート
- 26 燒結金属板
- 28 固定部材
- 30 ボルト
- 32 ナット

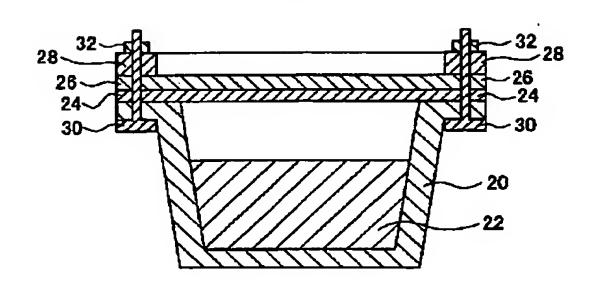
【図1】



【図2】



[図3]



フロントページの続き

(72)発明者 渡邊 次郎

神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株式会社平塚製造所内

Fターム(参考) 4G061 AA20 BA01 CA05 CB04 CB16

CD02 CD22 CD25 DA32 DA43

4H017 AA03 AA04 AB07 AB15 AB17 AC02 AC04 AC05 AC16 AD05

AE03

4J002 AC073 AC113 BB00X BB03X

BB063 BB12X BB15X BB153

BB173 BB243 BB273 BD10X

BD12X BE03X BG06X BN03W

BN04W BP01X CF06X CF07X CH07X CH09X CL00X CN01X

GJ02